

FLAMEERETARDANT POLYPHENYLENE ETHER RUBBERMODIFIED IMPACTTRESISTANT POLYSTYRENE THERMOPLASTIC COMPOSITION

Publication number: JP54143460

Publication date: 1979-11-08

Inventor: ARUBURETSUCHI HAAMAN GURANZOU

Applicant: AMERICAN CYANAMID CO

Classification:



- international: **C08K5/5357; C08L25/06; C08K5/00; C08L25/00;**
(IPC1-7): C08K5/53; C08L51/04

- european: C08K5/5357; C08L25/06

Application number: JP19790049853 19790424

Priority number(s): US19780900827 19780428

Also published as:

 US4162278 (A1)
 DE2916972 (A1)

[Report a data error here](#)

Abstract not available for JP54143460

Abstract of corresponding document: **US4162278**

Polyphenylene ether resin/rubber-modified, high-impact polystyrene thermoplastic compositions as rendered flame retardant by use of specific pentaerythrityl phosphonate compounds.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

⑫公開特許公報(A)

昭54—143460

⑤Int. Cl.² 識別記号 ⑥日本分類 庁内整理番号 ④公開 昭和54年(1979)11月8日
 C 08 L 51/04 25(1) C 318.4 6911—4 J
 C 08 K 5/53 // C A E 25(1) D 62 7016—4 J 発明の数 1
 (C 08 L 51/04 25(1) A 261.4 審査請求 未請求
 C 08 L 71/04)

(全 4 頁)

⑭難燃性ポリフェニレンエーテル樹脂 / ゴム変性された耐衝撃性ポリスチレン熱可塑性組成物

ンゾウ

アメリカ合衆国ニュージャージー州サマセット・パドン・ウツド・ドライブ34

⑮特 願 昭54—49853

⑰出 願 人 アメリカン・サイアナミツド・カンパニー

⑱出 願 昭54(1979)4月24日

優先権主張 ⑲1978年4月28日⑳米国(US)
 ㉑900827

アメリカ合衆国ニュージャージー州ウエイン(番地なし)

㉒発 明 者 アルブレッチ・ハーマン・グラ

㉓代 理 人 弁理士 田丸 巖

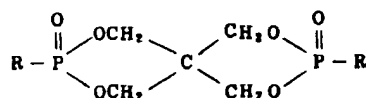
明 細 書

1. 発明の名称

難燃性ポリフェニレンエーテル樹脂 / ゴム変性された耐衝撃性ポリスチレン熱可塑性組成物

2. 特許請求の範囲

(1) 一般式:



(ここに R はメチル, フェニル, ベンジルまたはモノ-, ジ-もしくはトリメチルベンジルである)

で表わされるホスホン酸ペンタエリトリル化合物の効果的に難燃化する量を含むことを特徴とする難燃性ポリフェニレンエーテル樹脂 / ゴム変性された耐衝撃性ポリスチレン熱可塑性組成物。

(2) 前記の成形組成物がポリフェニレンエーテル樹脂 20 ~ 50 % とゴム変性された耐衝撃性ポリスチレン樹脂 50 ~ 80 % の均一ブレ

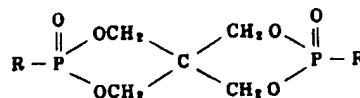
ンドを含む特許請求の範囲第(1)項記載の組成物。

(3) 前記の各 R が同じである特許請求の範囲第(1)項記載の組成物。

(4) 前記ホスホナートが前記組成物の少なくとも 5 重量 % 存在する特許請求の範囲第(1)項記載の組成物。

3. 発明の詳細な説明

本発明はホスホン酸ペンタエリトリル難燃化合物を含む難燃性ポリフェニレンエーテル樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、本発明は一般式:



(ここに R はメチル, フェニル, ベンジル, モノ-, ジ-及びトリメチルベンジルから選ばれる)

で表わされるホスホン酸ペンタエリトリル化合物を含む難燃性のゴム変性されたポリフェニ

レンエーテル熱可塑性樹脂組成物に関する。

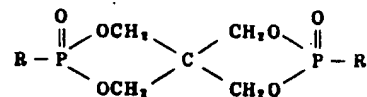
前記の一般式で表わされる化合物は公知である。フリードマン (Friedman) の米国特許第3141032号明細書には、R が炭素原子1～18個、好ましくは炭素原子8個以上のアルキルである化合物がポリオレフィン及び酢酸セルロース用の難燃剤として開示されている。

ドイツ公開特許第2630693号明細書には、R がアルキル (炭素原子1～10個)、シクロアルキル (炭素原子5～7個)、ハロアルキル (炭素原子1～3個)、アルケニル (炭素原子2～10個)、フェニル又はハロゲン置換フェニル；フェニルアルキル (炭素原子7～9個) 又はフェニルアルケニル (炭素原子8～10個) (これらの中のいずれもフェニル環はハロゲン原子で置換されていてもよい) である化合物が開示されている。これらの化合物は芳香族ポリエステル (例えばポリエチレンテレフタレート) 用の難燃剤として教示されている。

前記米国特許またはドイツ出願のいずれも、

ポリフェニレンエーテル樹脂用の難燃剤としてこれらの化合物を用いることは示唆していない。フリードマンの好ましい化合物 (すなわち、炭素原子が少なくとも8個の化合物) はポリフェニレンエーテル樹脂を難燃化するには効果的でない。ドイツ出願の化合物中のあるもの、特にR がフェニル及びベンジルの化合物はポリフェニレンエーテル用の難燃剤として有用であるが、他の化合物は効果がない。このように、いずれの参考特許にも本発明の特定化合物がポリフェニレンエーテル樹脂用の難燃剤として有用であろうということは全く示唆されておらず、従って本発明はこれらの開示から予見され得るものではない。

本発明は一般式：

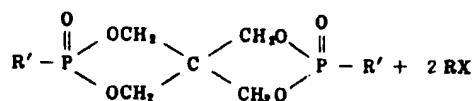
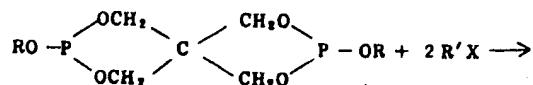


(ここにRはメチル、フェニル、ベンジル、モノ-、ジ-またはトリメチルベンジルである)

で表わされるホスホン酸ペンタエリトリチルを、難燃化に有効量で添合することによつて難燃性のゴム変性されたポリフェニレンエーテル樹脂組成物を提供するものである。

この化合物は公知の方法で製造できる。メチル及びフェニル誘導体はそれぞれメチルホスホン酸ジクロリド及びフェニルホスホン酸ジクロリドとペンタエリトリトールとを塩化メチレン又はジオキサン溶液中で約50℃で、もしくは無溶媒下に反応させることによつて製造できる。

一般に本化合物は、溶媒 (例えばジオキサン) 中又は無溶媒下に適当な活性ハロゲン化合物例えば塩化 (臭化) ベンジル、と適当なジアルキルペンタエリトリチルジホスไฟト、例えばジエチルペンタエリトリチルジホスไฟトとを反応させることにより、アルブゾフ型 (Arbuzov-type) 転位を経て製造できる。



本発明で有用なポリフェニレンエーテル樹脂は本発明に参照として包含される米国特許第4024093号明細書に記載されているようにして製造できる。特に、本発明の化合物が有用であるポリフェニレンエーテル樹脂は、ポリフェニレンエーテル10～90重量部好ましくは20～50重量部、およびスチレン重合体90～10重量部好ましくは50～80重量部を含むゴム変性されたポリフェニレンエーテル樹脂である。このスチレン重合体はゴム変性された耐衝撃性ポリスチレンである。この樹脂は相互に可溶である2種の重合体のブレンドであつて、均一な重合体組成物を形成する。

難燃性ホスホン酸ペンタエリトリテル化合物は下記のような自己消炎性組成物を与えるに足る量でブレンドしたポリフェニレンエーテル樹脂中に用いる。一般に、この化合物は約5~20重量部好ましくは6~10重量部の量で用いられる。

難燃化合物は任意の公知の方法、例えば、2本ロール式プラスチックミルまたはパンバリーミキサーによる混練、重合体との乾燥混合及び押出、その他によつて重合体中に加えることができる。

なお、可塑剤、染料、顔料、熱安定剤及び光安定剤、酸化防止剤、帯電防止剤、ホトクロム剤等の成分を重合体組成物中に添合することも亦本発明の範囲内に含まれる。

以下の実施例によつて本発明を詳述する。

例 1




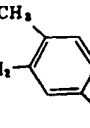
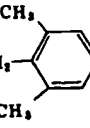
乾燥状態でブレンドすることによつて製造した表1記載のホスホン酸ペンタエリトリテル化合物6重量部を含むポリフェニレンエーテル／

ゴム変性された耐衝撃性ポリスチレン(ゼネラル・エレクトリック社のノリル・タイプ731)のブレンドの合計10gを、(ASTM D-1238記載の)メルトインデックス装置を通して290~300℃で押出した。長さ7.6~12.7cm(3~5インチ)、直径0.64cm(0.25インチ)の円筒形押出し試料を、アンダーライター実験室試験UL94、垂直試験法3.10~3.15(1973年9月)に記載された下記の燃焼性試験法に付した。垂直の位置に固定した円筒形重合体に19cm(3/4インチ)の青色炎(メタン又は天然ガス)で10秒間着火させた後、炎を取除く。25秒以内に炎が消えたら、再度10秒間着火させ、そして再び炎を取除く。炎の消火時間を記録する。それぞれの着火炎に対して消炎時間が5秒を超えない場合、この試料をV-0と評価し、第一又は第二のいずれかの着火炎に対する消炎時間が5~25秒の場合はV-1とする。試料がいずれかの着火炎に対して25秒以上の消炎時間を自由燃焼(FB)と評価し、試験に不合格とみなす。

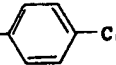
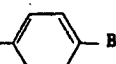
す。

表 1

燃焼性試験結果

試 料	R	燃焼性の評価*
A	-CH ₃	V-0; V-0
B		V-1; V-1
C	-CH ₂ - 	V-1; V-1
D	-CH ₂ -  -CH ₃	V-1; V-0
E		V-1; V-1
F		V-1; V-1

(第1表つづき)

試 料	R	燃焼性の評価*
G	-CH ₂ -  -CH ₃	FB; FB
H	-CH ₂ -  -Br	V-1; FB
I	-CH ₂ CH=CH ₂	FB; FB

*評価は2回の別々の測定による

例 2

ジホスホン酸ジデシルペンタエリトリテル(J)及びジホスホン酸ジオクタデシルペンタエリトリテル(K)(これらはフリードマンの米国特許第3,141,032号明細書の例6及び例1にそれぞれ記載された化合物である)と比較して、ジホスホン酸ジメチルペンタエリトリテル(A)を例1と同様に評価した。結果を表2に示す。

表 2

試 料	燃焼性の評価	消炎に要した時間*
A	V-0	16秒
J	V-1	55秒
K	FB	不合格

* 3個の試験片を用いて各試料に2回着炎を行なった。

例 3

下記のホスホン酸ペンタエリトリテル類を例1の方法に従つて評価した。ただしこれらの化合物は8重量%の量でゴム変性された耐衝撃性ポリスチレン中に添合した。いずれの化合物も燃焼性試験に合格しなかつた。評価した化合物は以下の通りである。

- 1) ジホスホン酸ジベンジルペンタエリトリテル*
- 2) ジホスホン酸ジ(p-クロロベンジル)ペンタエリトリテル
- 3) ジホスホン酸ジ(p-プロモベンジル)ペンタエリトリテル
- 4) ジホスホン酸ジフェニルペンタエリトリテル*

5) ジホスホン酸ジメチルペンタエリトリテル

6) ジホスホン酸ジデシルペンタエリトリテル

7) ジホスホン酸ジオクタデシルペンタエリトリテル

(* 印は本発明の化合物である)

例 4

特定のホスホン酸ペンタエリトリテルをそれぞれ4%及び8%用いて例1の手順をくり返した。表3に示す結果は、4%のみのホスホナート化合物を添合した場合には難燃性が生じないのに対し、8%使用ではすべての試料がV-0またはV-1であることを示している。

表 3

R	4%時の燃焼性評価	8%時の燃焼性評価
メチル	FB; V-1	V-0; V-0
フェニル	FB; FB	V-1; V-1
ベンジル	FB; FB	V-1; V-1
4-メチルベンジル	FB; FB	V-0
2,4-ジメチルベンジル	FB; FB	V-0; V-1
2,4,6-トリメチルベンジル	FB; FB	V-1; V-1